



Trabajo Fin de Máster

Caracterización de contadores de centelleo sólido de SZn(Ag) para la determinación del contenido radiactivo alfa total en muestras de agua y suelo de interés medioambiental

Alba Pérez Vela

Directores

Jose Ángel Villar Rivacoba
Carmen Pérez Marín

Universidad de Zaragoza - Facultad de Ciencias
Master en Física y Tecnologías Físicas
2012-2013

Índice

1. Introducción	1
1.1. Objetivos	1
1.2. Introducción	1
1.3. Desintegración alfa	2
1.3.1. Desintegraciones Nucleares	2
1.3.2. Desintegración alfa y partículas alfa	3
1.3.3. Dinámica de la desintegración alfa	4
1.3.4. Interacción de las partículas α con la materia y efectos biológicos	5
2. Instrumentación	7
2.1. Fotomultiplicador y Amplificador	7
2.2. Material centelleador sólido de ZnS(Ag)	8
2.3. Contador proporcional de flujo de gas	9
3. Metodología	10
3.1. Caracterización de los contadores de centelleo sólido de ZnS(Ag), eficiencia del sistema de medida y calibración	10
3.2. Curvas de autoabsorción	11
3.3. Procedimiento de preparación de muestras	11
3.3.1. Preparación de planchetas de muestras de agua	11
3.3.2. Preparación de planchetas de muestras de suelo	13
3.4. Cálculo del índice de actividad alfa total	14
4. Resultados experimentales	16
4.1. Caracterización de los contadores de centelleo sólido de ZnS(Ag) y calibración	16
4.2. Curvas de autoabsorción	19
4.3. Análisis de las muestras de agua	20
4.3.1. Análisis de los resultados	20
4.4. Muestras de suelo	23
4.4.1. Análisis de los resultados	25
5. Conclusiones	27

1. Introducción

1.1. Objetivos

El estudio presentado en este trabajo se basa en la caracterización de dos contadores de centelleo sólido de $ZnS(Ag)$ y su utilización para la medida del contenido radiactivo alfa total de muestras de agua y de suelo de interés medioambiental. La caracterización de un contador de centelleo sólido consiste en la determinación del voltaje óptimo de operación, su nivel inferior de discriminación, el estudio de sus curvas de autoabsorción y la eficiencia de recuento del sistema de detección.

Se lleva a cabo la preparación de planchetas de agua potable y de suelo. Las planchetas de agua corresponden a muestras recogidas de agua del grifo del Laboratorio de Radioquímica de la Universidad de Zaragoza con frecuencia mensual durante el año 2012. Las planchetas de suelo corresponden a muestras de suelo procedente de distintas localidades de la Comunidad Autónoma de Aragón. Finalmente se comparan los resultados obtenidos en este tipo de detector con los obtenidos en un contador proporcional de flujo de gas así como con bibliografía existente.

1.2. Introducción

El agua es una sustancia imprescindible para la vida, por ello es muy importante determinar su calidad. Uno de los parámetros a tener en cuenta es su radiactividad. Se puede estimar este valor a partir de los índices de actividad que informan de la presencia de radionúclidos en el agua. En este contexto se suelen utilizar tres índices de actividad: alfa total, beta total y beta resto. En este trabajo nos vamos a centrar en el índice de actividad alfa total que informa de la concentración de emisores alfa en la muestra, referidos al ^{241}Am , que es el radionúclido con el que habitualmente se calibran los sistemas de medida alfa.

La determinación del índice de actividad alfa total tiene interés por ser uno de los parámetros incluidos en la legislación nacional e internacional asociada a la calidad del agua. La Organización Mundial de la Salud, [1], estableció una serie de recomendaciones que se recogen en la Directiva Europea 98/83/CE, que en el ámbito nacional se ha reflejado en el Real Decreto 140/2003 [2], por el que se establecen los criterios sanitarios de la calidad del agua de consumo humano. Este Real Decreto tiene por objeto establecer los criterios sanitarios que deben cumplir las aguas de consumo humano y las instalaciones que permiten su suministro desde la captación hasta el grifo del consumidor y el control de éstas, garantizando su salubridad, calidad y limpieza, con el fin de proteger la salud de las personas de los efectos adversos derivados de cualquier tipo de contaminación de las aguas. Según el Real Decreto [2], el límite de índice de actividad alfa total para aguas potables es $100Bq/m^3$. Los parámetros radiológicos que deben controlarse y los valores máximos permitidos aparecen en la siguiente tabla.

Parámetro	Valor paramétrico
Dosis indicativa total (DIT)	0.10mSv/año
Tritio	100Bq/l
Actividad alfa total	0,1Bq/l
Actividad beta total	1Bq/l

En el agua, la concentración de actividad alfa puede ser debida a emisores alfa de origen natural o antropogénico. Entre los de origen natural estarían los radionucleidos de las series ra-

diactivas del ^{238}U , ^{235}U y ^{232}Th . Los emisores alfa antropogénicos serían aquellos provenientes de actividades relacionadas con el uso de radionucleidos, tales como el $^{239+240}\text{Pu}$ y ^{241}Am . De todos ellos, los emisores alfa habitualmente presentes en el agua, tanto continental como marina, son los isótopos del uranio, torio, así como el ^{226}Ra y ^{210}Po . [1]

La caracterización del suelo es también de vital importancia ya que los radionúclidos presentes en el terreno pueden acabar formando parte de la cadena alimenticia a través de las plantas o del agua. El suelo es el resultado de las complejas relaciones que se establecen entre la fracción mineral y las poblaciones de organismos que se desarrollan en el medio edáfico, es decir, el medio relativo a la composición y naturaleza del suelo en su relación con las plantas y el entorno que le rodea. Cualquier elemento exógeno al medio edáfico que tenga la capacidad de incorporarse y permanecer en el mismo puede distorsionar el funcionamiento de todo el sistema. La contaminación del medio edáfico por radioisótopos está asociada a algunos cambios en el funcionamiento químico del mismo que repercuten posteriormente en la absorción de dichos isótopos por raíces de plantas y organismos del suelo. Los suelos con textura ligera (arenosa) tienen una menor capacidad de retención que los de textura pesada (arcillosa). Por tanto, la absorción por plantas y microorganismos será mayor en los suelos arenosos. El pH del suelo también influye notablemente en la retención de radioisótopos. En los suelos con pH ácido, los hidrogeniones pueden desplazar otros cationes (incluidos radionúclidos) aumentando la concentración de estos últimos en la solución del suelo. Por el contrario, en suelos con pH alcalino, pueden formarse precipitados insolubles con aniones como el carbonato, fosfato, ...etc., lo que se traduce en una menor disponibilidad [3]. El suelo es uno de los receptores terminales de la contaminación radiactiva antropogénica.

La medida de las muestras de agua y suelo para la determinación de su índice de actividad alfa total, se puede realizar con diversos detectores como: contadores proporcionales, contadores de centelleo sólido o líquido. En concreto, en este estudio utilizamos un detector de centelleo sólido con discos de sulfuro de cinc ZnS . Lo que se mide es la luz emitida por los cristales de sulfuro de cinc dopados con plata fijados a una lámina de plástico. La interacción de una partícula alfa en dicho cristal emite un haz de luz que es detectado por un fotomultiplicador y mediante la electrónica asociada, es posible el recuento de dichos impulsos.

1.3. Desintegración alfa

1.3.1. Desintegraciones Nucleares

La desintegración nuclear es un fenómeno físico [4] por el que los núcleos atómicos de algunos elementos químicos buscan la estabilidad emitiendo partículas ionizantes. Un proceso de desintegración nuclear ocurre cuando un átomo “padre”, con un tipo de núcleo se transforma en otro átomo con otro tipo de núcleo o en diferentes núcleos y otras partículas. Los núcleos producto de desintegración se conocen con el nombre de “hijos”. En la naturaleza existen diferentes procesos de desintegración nuclear.

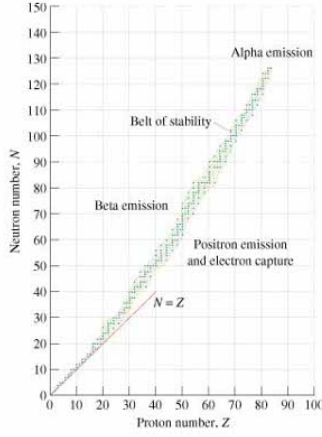
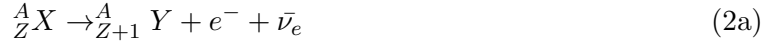


Figura 1: Curva de estabilidad de los núcleos

Entre ellos se encuentra la desintegración alfa (α), beta (β) y gamma (γ). La desintegración α consiste en la conversión de un núcleo con exceso de protones y de neutrones en otro núcleo y una partícula alfa.



Además de la desintegración alfa existe la desintegración beta. En concreto, existen dos tipos de desintegración beta: β^- y β^+ . Los núcleos con exceso de neutrones sufren desintegración β^- emitiendo un núcleo con menor número de neutrones, un electrón (e^-) y un antineutrino electrónico ($\bar{\nu}_e$). En cambio, los núcleos con exceso de protones sufren una desintegración β^+ , emitiendo un núcleo con más neutrones, un positrón (e^+) y un neutrino electrónico (ν_e).



Además, existe otro tipo de desintegración nuclear que no acaba en una transmutación del átomo. La desintegración gamma (γ) emite el exceso de energía de un núcleo atómico excitado mediante un fotón gamma o mediante un proceso de conversión interna, es decir, el exceso de energía se comunica a un electrón orbital y éste es expulsado del núcleo.



1.3.2. Desintegración alfa y partículas alfa

Las principales propiedades de la desintegración alfa (α) se establecieron pronto en la historia de la física nuclear con el trabajo de Ernest Rutherford. Cada núcleo emisor de partículas alfa tiene asociada una energía de desintegración Q única y bien definida y por lo tanto son monoenergéticas. La emisión de partículas alfa se encuentra favorecida por dos hechos: la repulsión coulombiana entre los protones del núcleo y la gran estabilidad del núcleo de ${}^4_2\text{He}$ que es un núcleo doblemente mágico ($N = Z = 2$). Por tanto, los núcleos de gran tamaño son emisores alfa. No se conocen emisores alfa para $N < 82$.

Las partículas alfa (α) están formadas por dos protones y dos neutrones unidos formando una única partícula idéntica al núcleo de helio (He). La nomenclatura para esta partícula es

muy variada, ${}^4_2\text{He}^{2+}$, α^{2+} , α . Estas partículas son cargadas y pesadas, con una carga positiva igual a dos veces la carga elemental del electrón y de masa aproximadamente igual a $4uma$. De este modo, cuando un núcleo emite una partícula alfa su número atómico Z disminuye en dos unidades y su número másico A disminuye en 4.

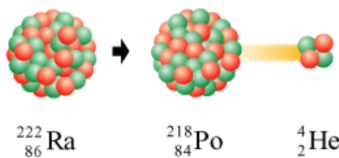


Figura 2: Ejemplo de la desintegración alfa que sufre el ${}^{222}_{86}\text{Ra}$ a ${}^{218}_{84}\text{Po}$ emitiendo una partícula alfa ${}^4_2\text{He}$

La emisión α es un efecto de la repulsión coulombiana (eléctrica) entre los protones en el núcleo atómico. Este efecto se va haciendo más importante a medida que el núcleo es más pesado porque la fuerza coulombiana repulsiva crece con el tamaño a un ritmo más rápido (Z^2) que la fuerza de ligadura nuclear específica que mantiene la cohesión de los núcleos que sólo crece con (A donde $Z/A \approx \text{cte}$). En general, es la única emisión de partículas ligeras energéticamente posible. Suele ocurrir en núcleos con $Z \geq 82$. Para $Z > 100$ la fisión espontánea se hace comparable a la emisión α . El concepto de espontáneo hace referencia a la que energía cinética que ha aparecido en el sistema no tiene causa aparente y debe provenir de una reducción en la masa del sistema.

1.3.3. Dinámica de la desintegración alfa

La partícula α es muy estable, tiene una estructura fuertemente ligada y tiene una masa relativamente pequeña ($3,72\text{GeV}/c^2$) comparada con la masa de sus constituyentes por separado ($m_p = 938,3\text{MeV}/c^2$ y $m_n = 939,6\text{MeV}/c^2$). La energía de ligadura de las partículas alfa es $B_\alpha = 28,3\text{MeV}$.

En la desintegración α debe conservarse el momento lineal, el momento angular, la carga eléctrica y el número másico A . Por consideraciones energéticas:

$$m_n(A, Z) \geq m_n(A - 4, Z - 2) + m_\alpha(4, 2) \quad (4a)$$

$$m_n(A, Z)c^2 = m_n(A - 4, Z - 2)c^2 + m_\alpha(4, 2)c^2 + Q_\alpha \quad (4b)$$

$$m_{at}(A, Z)c^2 = m_{at}(A - 4, Z - 2)c^2 + m_{at-\alpha}(4, 2)c^2 + Q_\alpha \quad (4c)$$

Por tanto, la energía disponible en el proceso de desintegración alfa Q_α es:

$$Q_\alpha = T_\alpha + T_Y = m_{at}(A, Z)c^2 - m_{at}(A - 4, Z - 2)c^2 - m_{at-\alpha}(4, 2)c^2 \quad (5)$$

También podemos expresar la energía disponible en el proceso a partir de las energías de ligadura nucleares:

$$Q_\alpha = B(A - 4, Z - 2) + B(\alpha) - B(A, Z) \quad (6)$$

La energía disponible en la desintegración alfa Q_α se distribuye entre la energía cinética de la partícula α y del núcleo de retroceso (núcleo hijo). El proceso es espontáneo si $Q_\alpha > 0$

A continuación obtenemos la energía cinética con la que sale el núcleo hijo y la partícula alfa teniendo en cuenta la conservación del momento lineal, y suponiendo que el núcleo padre (X)

está en reposo. Estudiamos el caso genérico en que el núcleo hijo puede quedar en un estado excitado de energía E_{exc}

$$\vec{p}_x = 0 \Rightarrow \vec{p}_Y = -\vec{p}_\alpha \Rightarrow p_Y = p_\alpha \quad (7a)$$

$$T_\alpha = \frac{m_Y}{m_\alpha + m_Y}(Q_\alpha - E_{exc}) \quad (7b)$$

$$T_Y = \frac{m_\alpha}{m_\alpha + m_Y}(Q_\alpha - E_{exc}) \quad (7c)$$

De manera aproximada, la partícula α se lleva el 98 % de la energía y el núcleo hijo el 2 %.

1.3.4. Interacción de las partículas α con la materia y efectos biológicos

La interacción de la radiación con la materia presenta diferentes procesos en función de la carga y de la masa de la partícula que interacciona. Las partículas cargadas experimentan un gran número de interacciones con los átomos constituyentes del medio material a su paso a través del mismo. En el transcurso de las interacciones las partículas van perdiendo su energía hasta que, si el material posee un espesor suficiente, llegan a detenerse y a neutralizarse eléctricamente. Los procesos de ionización, excitación y emisión de la radiación de frenado (*bremsstrahlung*) son los que contribuyen de manera fundamental a la pérdida de energía de las partículas cargadas a su paso a través de la materia. En el caso concreto de las partículas α , son partículas pesadas y por lo tanto pierden su energía fundamentalmente por colisión y excitación. La pérdida de energía por *bremsstrahlung* puede considerarse despreciable.

Las partículas alfa son las menos penetrantes de las radiaciones. En aire, incluso las partículas alfa más energéticas recorren únicamente varios centímetros y en un tejido el rango es de unas pocas micras. Interaccionan con los electrones atómicos siendo la interacción con los núcleos muy baja. En esta interacción, las partículas α pierden la mayor parte de su energía en las colisiones con los electrones del absorbente dando lugar a la excitación y ionización de los átomos del medio. Sus trayectorias son prácticamente rectas y su ionización específica muy alta, por lo que tienen alcances cortos. En una colisión entre una partícula ionizante pesada y un electrón orbital del medio absorbente, la energía transferida por la partícula al electrón viene dada por:

$$\Delta E = \frac{2(9 \cdot 10^9 \cdot Q \cdot q)^2}{ma^2v^2} \quad (8)$$

Las partículas α producen una ionización específica muy elevada ya que pierden su energía en un recorrido muy corto, y por lo tanto, la densidad de pares de iones producidos es muy grande. La ionización específica se define como el número de pares de iones producidos por unidad de longitud de camino, y es igual al poder de frenado dividido por la energía necesaria para producir un par de iones. El poder de frenado S se define como la tasa de pérdida lineal de energía a lo largo de una trayectoria:

$$S = -\frac{dT}{dx} \quad (9)$$

La ionización específica va aumentando a medida que la partícula penetra en el medio, debido a que la velocidad de la partícula alfa se va reduciendo y, por lo tanto, la partícula está más afectada por la interacción coulombiana de un átomo cercano. El valor máximo de la ionización específica se alcanza poco antes de finalizar su recorrido. Al final del trayecto, la partícula α capta dos electrones y se convierte en un átomo de helio (He).

Según acabamos de establecer, las partículas alfa son las menos penetrantes de las radiaciones. Pero eso no significa que sean menos dañinas. El hecho de que recorran únicamente rangos del orden de centímetros en aire y en un tejido unas pocas micras, las hace especialmente peligrosas si son ingeridas. Por ello es de vital interés el control y vigilancia del índice de actividad α del agua que consumimos.

2. Instrumentación

El proceso de detección en este tipo de contadores de centelleo, como los de la figura 3 se produce del siguiente modo. Una partícula, en nuestro caso concreto partículas α , son emitidas desde la muestra de suelo o agua de interés. El material centelleador absorbe parte de la energía de las partículas incidentes, partículas α , y la re-emite en forma de corto destello de luz. Los fotones re-emitidos interactúan con un fotomultiplicador acoplado al material centelleador. El fotomultiplicador (PMT) absorbe la luz emitida por el centelleador en forma de fotones y la re-emite en forma de electrones producidos por efecto fotoeléctrico en el fotocátodo. Los electrones, fotoelectrones, producidos por efecto fotoeléctrico son conducidos hacia una serie de electrodos llamados *dinodos* ayudados por un campo eléctrico. Los fotoelectrones se van multiplicando en las diferentes etapas al pasar por los dinodos hasta que finalmente en el último, *ánodo*, se recoge una corriente apreciable. La amplitud del pulso de salida del fotomultiplicador es proporcional al número de fotones de centelleo producidos, por tanto, proporcional a la energía depositada en el cristal. A continuación, estudiamos cada una de sus partes por separado [5].



Figura 3: Fotografía del montaje experimental. En la parte superior del chasis observamos (derecha) dos fuentes de alta tensión para ambos detectores, los dos módulos siguientes corresponden el amplificador lineal para cada uno de los detectores. En la parte inferior observamos dispuestos de forma vertical dos tubos cilíndricos, compuestos por el material centelleador, fotomultiplicador y preamplificador de manera integrada.

2.1. Fotomultiplicador y Amplificador

El fotomultiplicador y el preamplificador se encuentran unidos en el mismo soporte físico. Técnicamente, el módulo es un PM (Photomultiplier) Tube Base/Preamp Model 2007. En la tabla 1 encontramos un resumen de las especificaciones técnicas.

Serial Number	2103165
Date shipped	111133
PHR %	7,02
Tube Type	B51D01S

Tabla 1: Características técnicas del tubo fotomultiplicador y preamplificador.

2.2. Material centelleador sólido de $ZnS(Ag)$

Los detectores de centelleo sólido de $ZnS(Ag)$, de sulfuro de cinc dopado con plata son uno de los tipos más antiguos de centelleadores inorgánicos [5]. Estos detectores tienen una eficiencia de centelleo comparable a los de $NaI(Tl)$, pero están solamente disponibles como polvo policristalino. Por ello, su uso está limitado a finas capas, utilizadas sobretodo para detectar partículas alfa y otros iones pesados. El sulfuro de cinc ZnS es un compuesto inorgánico. Si se le añade una pequeña cantidad (ppm) de un activador, presenta propiedades de luminiscencia. La luminiscencia es un proceso de emisión de luz cuyo origen no radica únicamente en las altas temperaturas, sino que puede ser provocada por diferentes procesos. En concreto, si el origen de la luminiscencia es una irradiación con partículas α se trata de un proceso de *radioluminiscencia*. El *activador* es el elemento que se añade como dopante al cristal del material para crear ciertos tipos de inhomogeneidades para que se produzca el efecto de luminiscencia. Para el cristal de ZnS es común utilizar como activador la plata Ag . La luminiscencia que se produce en este caso pertenece al rango del espectro visible (450nm) y presenta un color azul brillante. Por desgracia, en nuestro experimento esto no se puede apreciar porque está contenido en un sistema cerrado.

El mecanismo de centelleo en materiales inorgánicos [5] depende de los niveles de energía determinados por la red cristalina del material. Según se observa en la figura, en materiales aislantes o semiconductores, los electrones tienen disponibles solamente ciertas bandas de energía. La banda inferior conocida como banda de valencia, que representa a los electrones que están fijos en puntos de la red. Mientras que la banda superior, conocida como banda de conducción, representa aquellos electrones que tienen energía suficiente para moverse libremente a través del cristal. Existe una banda intermedia de energías, llamada banda prohibida o gap, en la que los electrones nunca se pueden encontrar si se trata de un cristal puro. El proceso habitual de absorción de energías produce la elevación de un electrón de su posición normal en la banda de valencia a través del gap hasta la banda de conducción. En el cristal puro, la vuelta del electrón a la banda de valencia con la emisión de un fotón es un proceso ineficiente. Además, las anchuras típicas del gap son tales que el fotón resultante tendría una energía muy elevada para estar en el rango visible.

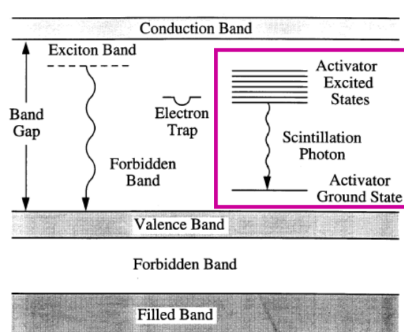


Figura 4: Esquema de los niveles de energéticos disponibles en el cristal centelleador de sulfuro de cinc dopado con plata

Para poder tener fotones visibles de emisión durante el proceso de desexcitación se añaden pequeñas cantidades de impurezas al centelleador inorgánico. Estas impurezas se llaman

activadores y crean lugares especiales en la red en los que la estructura normal de bandas de energía del cristal puro se modifica. Como resultado, existirán estados de energía dentro del gap en los que el electrón se podrá desexcitar a la banda de valencia. Como esta energía de desexcitación es menor que el valor de energía necesaria para saltar el gap completo, esta transición genera un fotón visible y que sirve como base para el proceso de centelleo.

En nuestro caso concreto, el material centelleador inorgánico es sulfuro de zinc (ZnS) y como activador utilizamos plata (Ag). El cristal $ZnS(Ag)$ tiene su longitud de onda de máxima emisión en $450nm$ que corresponde con el color azul del espectro visible y el tiempo de decaimiento, es decir, el tiempo que tarda en desexcitarse un electrón y emitir un fotón de centelleo es de $0,2\mu s$

2.3. Contador proporcional de flujo de gas

Un contador proporcional de flujo de gas es un tipo de detector de ionización gaseoso utilizado para contar partículas de radiación ionizante incidente. El contador proporcional que se utiliza en la sección 4.3 para medir las planchetas de agua y de suelo es un contador proporcional de flujo de gas Berthold LB770 que dispone de 10 detectores ultraplanoes dispuestos en dos filas de 5 unidades. Los detectores están rodeados por un blindaje de 10 cm de espesor de ladrillos de plomo (aproximadamente 650kg) para atenuar la radiación gamma externa. Un sistema de anticoincidencia permite reducir el fondo ocasionado por los rayos cósmicos de más energía. El sistema está comunicado con un PC mediante una tarjeta PC Counter Board LB3945 y el programa UMS que controla la medida de las muestras.[6]



Figura 5: Fotografía de un contador proporcional de flujo de gas Berthold LB770.

3. Metodología

3.1. Caracterización de los contadores de centelleo sólido de $\text{ZnS}(\text{Ag})$, eficiencia del sistema de medida y calibración

La medida de las emisiones alfa [7] se realiza mediante un sistema detector de centelleo sólido de $\text{ZnS}(\text{Ag})$. Las muestras preparadas según el procedimiento descrito en esta misma sección, apartado 3.3 se miden en una plancheta de acero inoxidable sobre la que se coloca un disco fino que tiene en una de sus caras un depósito de finos cristales de $\text{ZnS}(\text{Ag})$. El sistema de medida está formado por dos cadenas de detección, cada una de ellas contiene un cambiador de muestras, un tubo fotomultiplicador fabricado por Canberra (modelo 2007) y un preamplificador fabricado por Canberra (modelo 2007P). Cada tubo fotomultiplicador está alimentado por su correspondiente fuente de alta tensión. A su vez, cada tubo fotomultiplicador está asociado a una escala amplificadora provista de un amplificador, un discriminador y una escala de recuento. Los parámetros que buscamos optimizar en nuestra caracterización son el voltaje de la fuente de alta tensión, el nivel inferior de discriminación (NID) de los impulsos, las curvas de autoabsorción y la eficiencia.

Para realizar el estudio de las características óptimas de funcionamiento, hemos realizado diferentes series de medidas variando los parámetros del detector (ganancia, NID, voltaje). Inicialmente hemos fijado el valor de ganancia (coarse gain, fine gain) del detector. Para una ganancia fija hemos variado el nivel inferior de discriminación (NID) desde (0.1 a 0.8) y dejando fijo un valor, hemos variado el voltaje aplicado entre el ánodo y el cátodo de los tubos fotomultiplicadores desde 0.50kV a 0.90kV. El tiempo de recuento para cada una de las combinaciones de voltaje y NID fue de 300 segundos.

Las gráficas mostradas en la sección 4.1 representan las curvas características típicas para los detectores de centelleo sólido de $\text{ZnS}(\text{Ag})$ utilizados en este trabajo. A partir de un determinado voltaje se empiezan a detectar cuentas y a este voltaje se le denomina *potencial umbral*. A partir de este valor, un ligero incremento en el voltaje produce un rápido incremento de la tasa de recuento. Este incremento continúa hasta una región conocida como *plateau* o *meseta*, en la que los incrementos de voltaje producen un efecto muy pequeño en la tasa de recuento. El voltaje de trabajo del tubo fotomultiplicador debe escogerse dentro de esta región ya que representa una zona en la cual el detector es casi insensible a las variaciones de voltaje o del nivel de discriminación[5]. Si el potencial suministrado se incrementa más allá de la zona de *plateau*, se alcanza la zona de descarga continua, se pierde la estabilidad en el recuento y la mayoría de las cuentas no corresponden a las interacciones alfa con el detector. Por lo tanto, no se podría utilizar la tasa de recuento en esta zona para determinar la eficiencia del detector. Los fenómenos que contribuyen a este aumento del ruido son la emisión termoiónica de los electrones, la ionización de gases residuales, centelleos de cristal, etc..

La calibración consiste en la medida durante un periodo de tiempo que proporciona suficiente número de cuentas (> 10000) según el patrón utilizado. En nuestro caso este tiempo es de cinco minutos, con las características óptimas de funcionamiento de los contadores para la obtención de la eficiencia de recuento del sistema. El elemento patrón de calibración que utilizamos en este estudio es ^{241}Am , es un isótopo radiactivo emisor alfa de vida media $T_{1/2} = 432,2$ años. Este

isótopo se desintegra siempre emitiendo una partícula α de energía $5637,81\text{keV}$.

La medida de fondo se realiza colocando un disco de sulfuro de zinc en una plancheta desnuda de acero inoxidable y una medida de 5000 minutos para tener suficiente número de sucesos.

3.2. Curvas de autoabsorción

Como hemos comentado anteriormente, las partículas α se detienen con espesores de material fino, son muy poco penetrantes. Por tanto, hay que tener en cuenta que se puede producir absorción de las partículas α dentro de la propia plancheta, es decir, lo que se conoce como *autoabsorción*. La curva de autoabsorción es la función que relaciona el factor de autoabsorción con el espesor másico de la muestra o con su depósito expresado en gramos.

Debido a este fenómeno de autoabsorción es importante determinar la fracción de partículas α que dejamos de detectar porque se absorben en la plancheta e introducir este factor en la fórmula del índice de actividad alfa ecuación (13). A continuación se explica la preparación de las planchetas de autoabsorción con distintos depósitos para la determinación de la curva de interés.

- **Preparación de la muestra de calibrado con espesor másico cero**

Es una plancheta que únicamente contiene muestra de calibración. Sobre una plancheta previamente tarada se añade una actividad conocida de ^{241}Am y se evapora hasta peso constante.

- **Preparación de la muestra de calibrado para la elaboración de la curva de autoabsorción**

Para la preparación de la muestra de calibrado, se preparan una serie de planchetas previamente taradas, con una actividad conocida y constante de ^{241}Am y cantidades crecientes de una sal sódica, en nuestro trabajo NaNO_3 . A continuación, se homogeneiza la disolución de patrón y de sal sódica y se evaporan hasta peso constante.

3.3. Procedimiento de preparación de muestras

3.3.1. Preparación de planchetas de muestras de agua

Explicamos ahora el método para la preparación de las planchetas de agua [8]. El fundamento de este procedimiento de preparación de muestras se basa en la concentración por evaporación de la muestra de agua acidulada evitando que llegue a ebullición. Ésta se lleva a sequedad en la plancheta donde se realiza el posterior recuento de las emisiones alfa del residuo obtenido. Para la realización de este método son necesarios una serie de materiales y equipos. Los **reactivos** empleados: *a)* ácido nítrico concentrado (65-69 %), *b)* agua destilada, *c)* una solución de concentración de actividad certificada de ^{241}Am y *d)* nitrato sódico. El **material** necesario es: *a)* Sistema de evaporación: placa calefactora, baño de arena, estufa o lámpara, *b)* planchetas de acero inoxidable con un fondo α inferior a $0,05\text{cpm}$, *c)* desecador y *d)* material de uso corriente en el laboratorio. El fondo es el número de cuentas por unidad de tiempo debido a otros factores que no sean ni la muestra ni los reactivos utilizados en el procedimiento. Se expresa en cuentas por minuto, cpm. Por último, el **equipo** necesario es: *a)* balanza analítica, *b)* conductivímetro, *c)* sistema de detección: contador de centelleo sólido de sulfuro de cinc.

Explicamos ahora de manera detallada el procedimiento para la preparación de las muestras de agua.

1. Estimación del volumen de partida

Para establecer el volumen de partida en el análisis se debe tener en cuenta el peso del residuo que va a generar la muestra en la plancheta. Este peso debe de estar comprendido en el rango previamente establecido en la curva de autoabsorción que se analiza en la sección 3.2. Hay que tener en cuenta que las partículas α se absorben en un espesor muy fino, por lo que tener un espesor másico grande significaría que muchas de las partículas alfa se estarían *autoabsorbiendo* en la propia plancheta y no las detectaríamos. Es un efecto no deseado. La estimación del volumen adecuado se puede realizar a partir de: (a) La medida de conductividad ó (b) La determinación del residuo seco. En nuestro estudio el volumen óptimo se calcula a partir de la medida de conductividad y el volumen adecuado se estima según la siguiente expresión:

$$V_1 \approx \frac{EDM \cdot A \cdot 10^3}{\Lambda} \quad (10)$$

Donde V_1 representa el volumen de la muestra a tomar para obtener el EDM en (ml); EDM es el espesor másico deseado en (mg/cm^2); A es el área interior de la plancheta en (cm^2); Λ es la conductividad de la muestra en $\mu S/cm$

2. Preparación de la muestra

Se recogen 5 litros de nuestra agua potable del grifo del laboratorio de radioquímica según se observa en la imagen (a) de la figura 6. Se toma una alícuota de muestra adecuada para no superar el espesor másico de $5mg \cdot cm^{-2}$ aconsejado para la detección de alfa total. Se numera la plancheta de acero inoxidable y se tara utilizando la balanza analítica. A continuación se acidula la muestra de agua recogida con ácido nítrico hasta un pH comprendido entre 1 y 4, se numera y se guarda en bidones como los de la imagen (b) de la figura 6. El proceso de preparación de la muestra consiste en la evaporación a una temperatura constante sin llegar a ebullición para evitar pérdidas por proyecciones de la propia muestra y además evitar la contaminación con otras muestras que se estuvieran evaporando simultáneamente.

La muestra se reduce hasta un volumen aproximado de 3 a 5mL en un recipiente de vidrio como el que se muestra en las imágenes (d) y (e). Posteriormente, según se observa en la imagen (f), se transfiere cuidadosamente el concentrado de la muestra a la plancheta y se termina de secar bajo una lámpara de luz infrarroja, a 18 cm durante 60 minutos aproximadamente, procurando que el depósito obtenido sea lo más homogéneo posible y su peso constante. Finalmente las planchetas se guardan en un desecador hasta su medida, para la que deben transcurrir como mínimo 4 días.

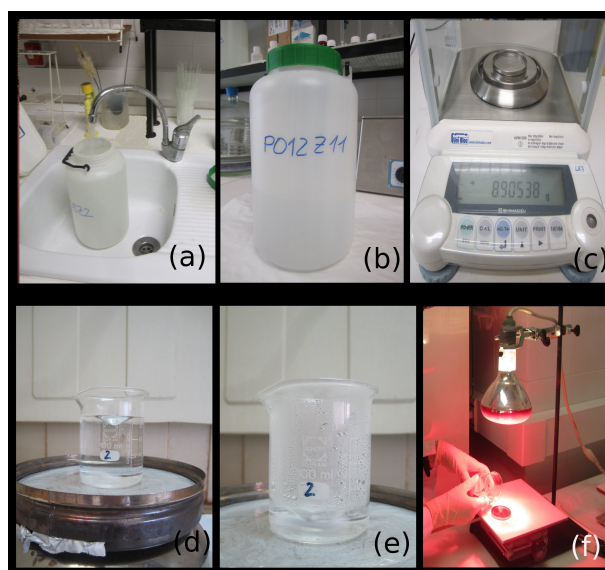


Figura 6: Composición de fotografías del proceso de obtención de las planchetas de agua potable. (a) Agua potable del grifo del laboratorio de química. (b) Agua potable de Noviembre de 2012 con ácido nítrico. (c) Tarado de la plancheta. (d) y (e) Evaporación de la muestra en una placa calefactora con agitador magnético. (f) Vertido de la muestra de agua en la plancheta y secado bajo lámpara infrarroja

3.3.2. Preparación de planchetas de muestras de suelo

El fundamento de este procedimiento de preparación de muestras de suelo se basa en la concentración por evaporación de la muestra de suelo disuelta con ácido nítrico. Ésta se lleva a sequedad en la plancheta donde se realiza el posterior recuento de las emisiones alfa del residuo obtenido. Para la realización de este método son necesarios los materiales y equipos descritos en el apartado 3.3.1.

Preparación de la muestra

Se realiza el muestreo de suelo de distintas localidades de Aragón acorde con la norma ISO 18589-6[9]. Se selecciona un área de unos $4m^2$ de superficie. Debe ser una zona lo más despejada posible y preferentemente sin vegetación. Se recoge una submuestra homogénea de suelo de unos $5kg$ aproximadamente, de las que luego se utilizarán de $0,05g$ a $0,2g$ para realizar la preparación. La tierra recogida se almacena en bidones numerados como los que se observan en la imagen (a) de la figura 7. A continuación se numera la plancheta de acero inoxidable y se tara utilizando la balanza analítica según se observa en la imagen (b). Luego, se pesa una cantidad de suelo de $0,05g$ a $0,2g$ directamente en la plancheta. Se añade a esta cantidad de suelo $2 - 3ml$ de agua destilada acidificada con ácido nítrico. Según se observa en las imágenes (c) y (d), la disolución se lleva a sequedad en la propia plancheta bajo una lámpara infrarroja a $18cm$ durante $60min$. En la imagen (e) se observa el aspecto de la muestra de suelo en la plancheta tras el secado. Finalmente las planchetas se guardan en un desecador como el de la imagen (f) hasta su medida, que debe ser como mínimo transcurridos 4 días.

En este caso, la preparación de la muestra de calibrado con espesor másico cero, la preparación de las muestras para la elaboración de la curva de autoabsorción y la determinación del fondo

son semejantes a los apartados, 3.3.1 y 3.2 presentados previamente.

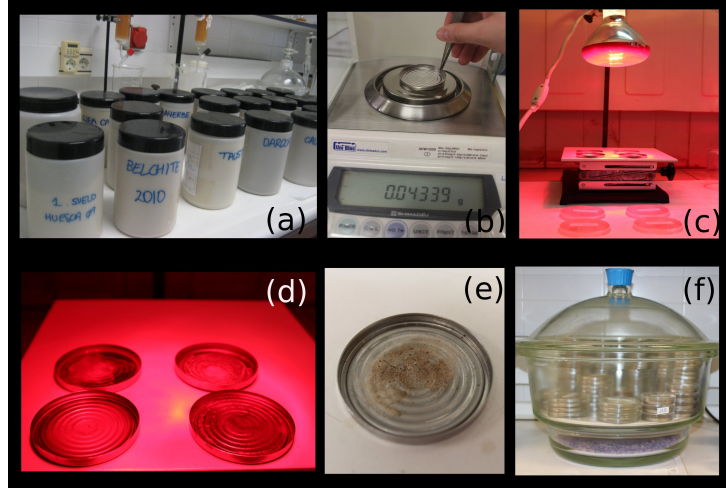


Figura 7: Composición de fotografías del proceso de obtención de las planchetas de suelo. (a) Bidones con muestras de suelo. (b) Tarado de la plancheta. (c) y (d) Secado en lámpara infrarroja de planchetas con depósito de suelo. (e) Depósito de suelo en la plancheta tras el secado (f) Almacenamiento de muestras en un desecador para evitar su hidratación

El proceso de medida de los patrones de calibración, muestras de autoabsorción, y recuento de muestras, se realiza introduciendo la plancheta correspondiente en el portaplanchetas del contador de centelleo sólido de sulfuro de cinc y se mide el tiempo necesario para obtener una estadística adecuada.

3.4. Cálculo del índice de actividad alfa total

El índice de actividad α , referida a una muestra de calibrado de ^{241}Am , es una estimación de la actividad alfa real de la muestra. Se expresa en Bq/m^3 o Bq/kg según se trate de muestras de agua o de suelo. A continuación se explica el método para la determinación de este índice. Aporta información del contenido en la muestra de radionucleidos emisores alfa no volátiles en las condiciones de trabajo.

1. Cálculo de la eficiencia de recuento

La eficiencia de recuento se calcula mediante la expresión

$$\epsilon = \frac{cpm_{\alpha} - cpm_{b_{\alpha}}}{dpm_{patron}} \quad (11)$$

donde, ϵ es la eficiencia de recuento correspondiente a la muestra de calibrado en tanto por uno, cpm_{α} es la tasa de recuento alfa de la muestra de calibrado en cuentas por minuto, $cpmb_{\alpha}$ es la tasa de recuento alfa en el fondo, en cuentas por minuto y dpm_{patron} son las desintegraciones por minuto de la muestra de calibrado de ^{241}Am .

2. Cálculo del factor de autoabsorción

Según hemos estudiado en 3.2, el factor de autoabsorción cuantifica la atenuación o pérdida de eficiencia de recuento del detector en la medida de las muestras de calibrado con un

espesor másico concreto y la eficiencia del equipo en el recuento de la muestra de calibrado de ^{241}Am con un espesor másico cero. Se determina según la siguiente expresión:

$$F_i = \frac{\epsilon_i}{\epsilon} \quad (12)$$

donde, F_i es el factor de autoabsorción para las diferentes muestras de calibrado preparadas según el apartado 3.2 y ϵ_i es la eficiencia de recuento de cada una de las muestras de calibrado. ϵ es la eficiencia de recuento correspondiente a la muestra de calibrado de espesor másico cero.

Una vez obtenidos los diferentes factores de autoabsorción F_i , se representan frente a los espesores másicos (mg/cm^2) o depósitos (g) correspondientes y se ajustan los puntos experimentales a una función cuadrática o semejante.

3. Cálculo del índice de actividad alfa total

El índice de actividad alfa total [8] se calcula mediante la siguiente expresión:

$$A = \frac{cpm_\alpha - cpm_{b_\alpha}}{60 \cdot \epsilon \cdot F_i \cdot V} \quad (13)$$

donde, A es el índice de actividad alfa total en la muestra, en Bq/m^3 o Bq/kg , cpm_α es la tasa de recuento alfa de la muestra en cuentas por minuto, cpm_{b_α} es la tasa de recuento alfa del fondo en cuentas por minuto, ϵ es la eficiencia de recuento correspondiente al patrón de calibración certificado, V es el volumen o peso de la muestra de agua en m^3 y de suelo en kg .

4. Cálculo de la incertidumbre de recuento en la determinación del índice de actividad alfa total

La incertidumbre de recuento en la determinación del índice de actividad alfa total para un factor de cobertura $k=2$ (nivel de confianza 95 %), se calcula mediante la siguiente expresión:

$$\sigma A = \frac{2}{60 \cdot \epsilon \cdot F_i \cdot V} \sqrt{\frac{cpm_\alpha}{t_m} + \frac{cpm_{b_\alpha}}{t_b}} \quad (14)$$

5. Cálculo de la actividad mínima detectable

La actividad mínima detectable (AMD) del índice de actividad alfa total, para un nivel de confianza del 95 % ($k = 2$), se calcula mediante la siguiente expresión: según ISO 11929-7 [10]:

$$AMD = \frac{3,29 \cdot \sqrt{\frac{cpm_{b_\alpha}}{t_m} + \frac{cpm_{b_\alpha}}{t_b}} + 2,7 \cdot \left(\frac{1}{t_m} + \frac{1}{t_b} \right)}{60 \cdot \epsilon \cdot F_i \cdot V} \quad (15)$$

Donde cpm_α es la tasa de recuento alfa de la muestra en cuentas por minuto, cpm_{b_α} es la tasa de recuento alfa del fondo en cuentas por minuto, t_m es el tiempo de medida de la muestra, t_b es el tiempo de medida del fondo, ϵ es la eficiencia de recuento correspondiente al patrón de calibración certificado, F_i es el factor de autoabsorción y V es el volumen o peso de la muestra de agua en m^3 y de suelo en kg .

4. Resultados experimentales

4.1. Caracterización de los contadores de centelleo sólido de ZnS(Ag) y calibración

El criterio principal que se utiliza para determinar las condiciones óptimas de funcionamiento es el de maximizar la eficiencia de recuento. La eficiencia se define como

$$\epsilon = \frac{cps}{dps} \cdot 100 \quad (16)$$

Donde *cps*, representa el número de cuentas medidas por segundo en el detector y *dps* es el número de desintegraciones emitidas por la muestra por segundo. Se observa que la eficiencia en función del voltaje se puede ajustar a un polinomio de grado 3 con la siguiente expresión:

$$\epsilon = a + b \cdot V + c \cdot V^2 + d \cdot V^3 \quad (17)$$

En las gráficas se muestra la eficiencia frente al voltaje aplicado al fotomultiplicador para diferentes valores de NID.

A pesar de que la eficiencia teórica de detección para una geometría 2π en un detector alfa es del 50 %, observamos que esta es inferior al 50 % en la zona del plateau. Esta discrepancia puede explicarse en función de la retrodispersión y de la autoabsorción.

A continuación, se muestran los resultados obtenidos en la caracterización de detectores. Se presentan diferentes gráficas para cada uno de los detectores en las que hemos variado la ganancia, el voltaje y el NID hasta encontrar las condiciones óptimas de funcionamiento.

■ Contador 1 de centelleo sólido ZnS

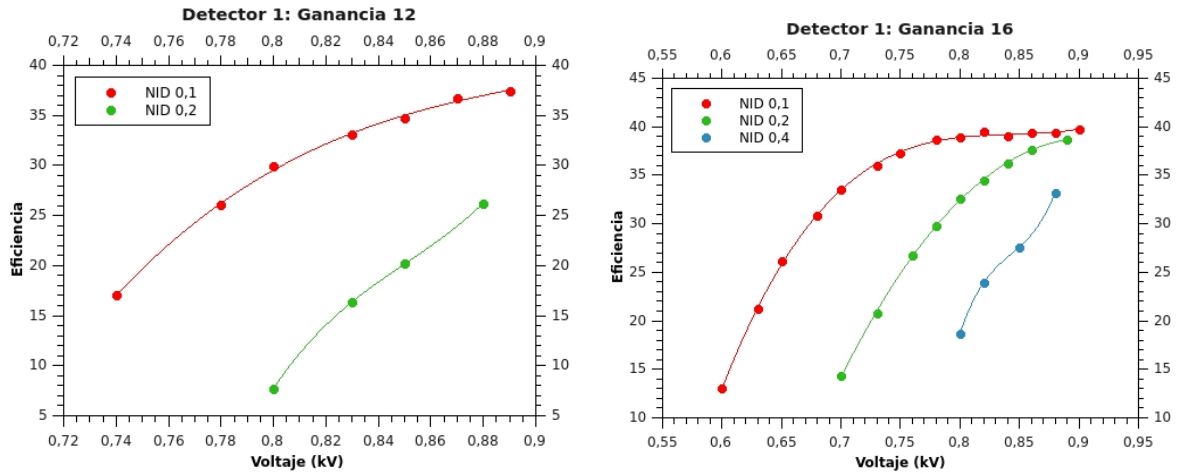


Figura 8: Caracterización del detector 1. (a) Variación de la eficiencia con el voltaje para diferentes valores del umbral inferior (NID) para ganancia 12.(b) Variación de la eficiencia con el voltaje para diferentes valores del umbral inferior (NID) para ganancia 16.

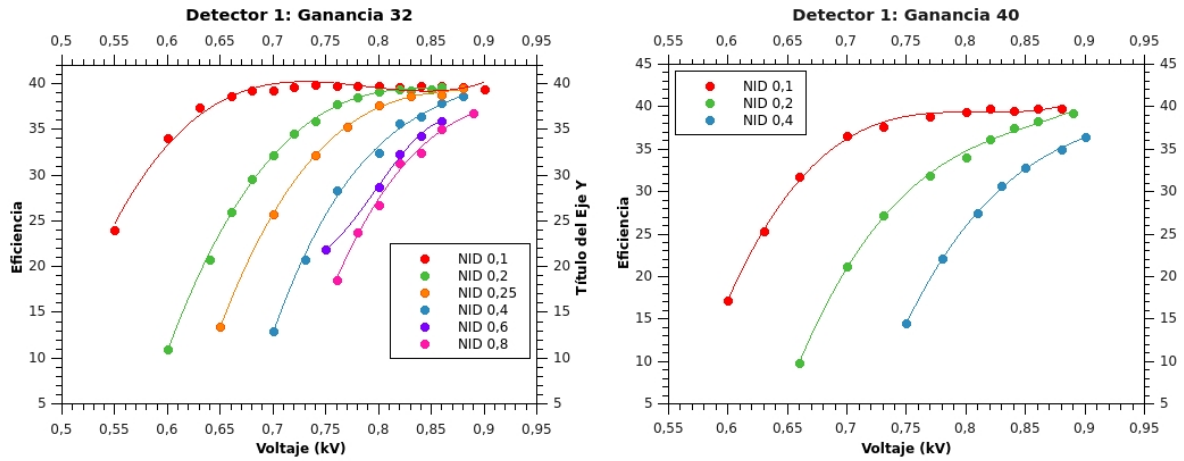


Figura 9: Caracterización del detector 1. (a) Variación de la eficiencia con el voltaje para diferentes valores del umbral inferior (NID) para ganancia 32.(b) Variación de la eficiencia con el voltaje para diferentes valores del umbral inferior (NID) para ganancia 40.

Una vez analizadas las gráficas de caracterización del detector 1, se presentan el estudio del detector 2. Según se observa en las gráficas 10 y 11 hemos trabajado con ganancias de 4, 6 y 8. El tubo fotomultiplicador del detector 2 es más reciente que el detector 1 y ésto se traduce en que la ganancia óptima de funcionamiento es inferior que en el caso del detector 1. Para cada uno de los valores de ganancias, se ha medido con diferente valor del umbral inferior (NID) según se aprecia en las gráficas 10 y 11.

■ Contador 2 de centelleo sólido ZnS

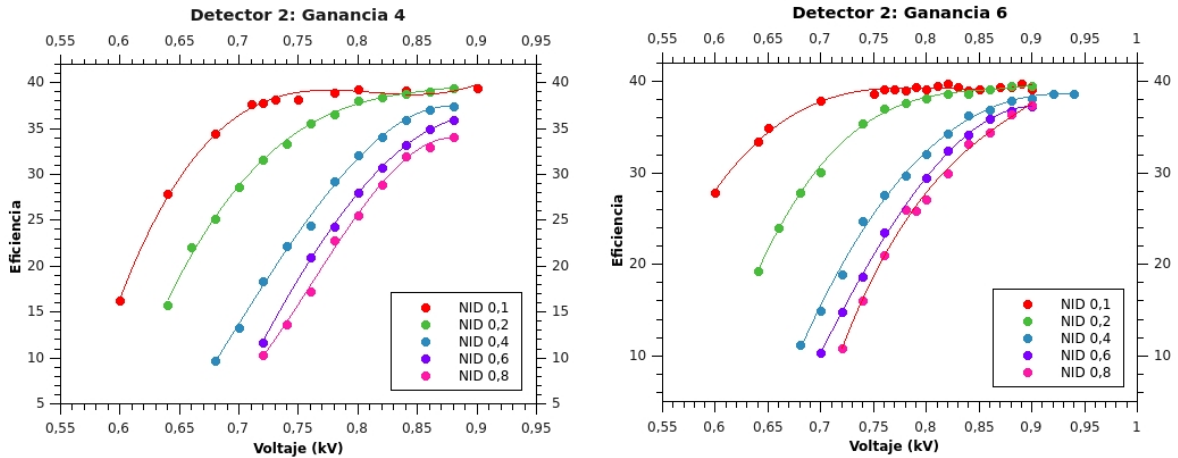


Figura 10: Caracterización del detector 2. (a) Variación de la eficiencia con el voltaje para diferentes valores del umbral inferior (NID) para ganancia 4.(b) Variación de la eficiencia con el voltaje para diferentes valores del umbral inferior (NID) para ganancia 6.

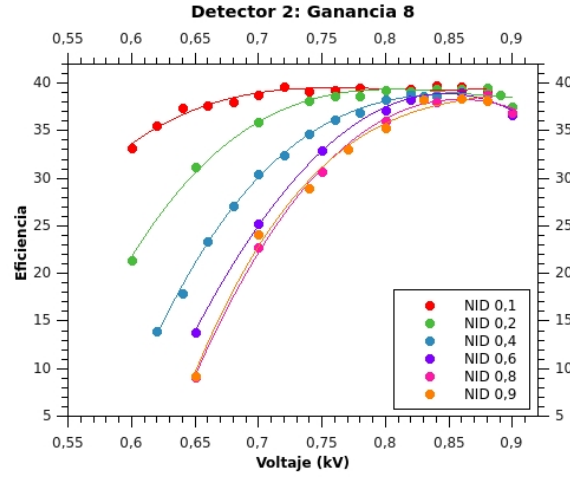


Figura 11: Caracterización del detector 1. (a) Variación de la eficiencia con el voltaje para diferentes valores del umbral inferior (NID) para ganancia 8

Si analizamos las curvas obtenidas para el **detector 1**, observamos que para ganancia 12 no se observa plateau para ningún valor de NID. Para ganancia 16 aparece un ligero plateau con valor de NID de 0.1, pero es un valor muy bajo y no filtra el ruido, por lo tanto no lo consideramos adecuado. A ganancias de 32 y 40, para diferentes valores de NID hay plateau. La elección entre ambas posibilidades es clara, si para valores de ganancia 32 obtenemos valores óptimos de eficiencia es preferible permanecer en ganancia 32 antes que utilizar 40 y llevar más al límite el sistema. Es preferible utilizar un valor de ganancia 32 y cuando el detector se deteriore subir la ganancia a 40. Por tanto, una vez fijada la ganancia del sistema en 32, el valor mejor de NID y para el que obtenemos mayor eficiencia es el de 0.2 a un voltaje de 0.85kV.

Si analizamos las curvas obtenidas para el **detector 2**, observamos que para las distintas ganancias hay plateau entre los distintos valores de NID. Para ganancias 4 y 6 aparece un ligero plateau a valores de NID de 0.1 y 0.2 y pero las mejores condiciones de anchura de plateau y eficiencia de detección se obtienen para ganancia 8, NID 0.2 y voltaje 0.88kV.

A continuación, mostramos las curvas de eficiencia en función de voltaje, así como las características de funcionamiento elegidas para ambos contadores.

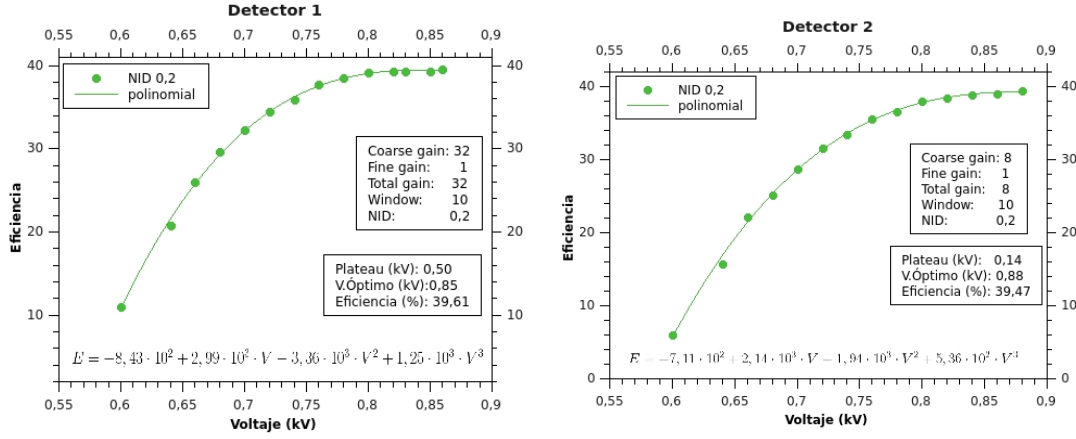


Figura 12: (a) Dependencia de la eficiencia en función del voltaje y características de operación del contador de centelleo sólido 1. (b) Dependencia de la eficiencia en función del voltaje y características de operación del contador de centelleo sólido 2

La calibración realizada en ambos detectores durante un tiempo de 5 minutos proporciona para el detector 1 una eficiencia de 39,55 % y para el detector 2 de 38,54 %. La eficiencia se calcula según,

$$\epsilon = \frac{cpm_{\alpha} - cpmb_{\alpha}}{dpm_{\alpha}} \quad (18)$$

donde, ϵ es la eficiencia de recuento correspondiente a la muestra de calibrado en tanto por uno, cpm_{α} es la tasa de recuento alfa de la muestra de calibrado en cuentas por minuto, $cpmb_{\alpha}$ es la tasa de recuento alfa en el fondo, en cuentas por minuto y dpm_{patron} son las desintegraciones por minuto de la muestra de calibrado de ^{241}Am , en desintegraciones por minuto. Este valor de eficiencia es el que se introduce en la fórmula (13) de 3.4.

4.2. Curvas de autoabsorción

En las gráficas de la figura 13 se representa el factor de autoabsorción en función del depósito de muestra, calculado según el apartado 3.4. Recordemos la fórmula

$$F_i = \frac{\epsilon_i}{\epsilon} \quad (19)$$

donde, F_i es el factor de autoabsorción para las diferentes muestras de calibrado preparadas según el apartado 3.2 de 3.3.1. ϵ_i es la eficiencia de recuento de cada una de las muestras de calibrado preparadas según el apartado 3.2 de 3.3.1. ϵ es la eficiencia de recuento correspondiente a la muestra de calibrado de espesor másico cero.

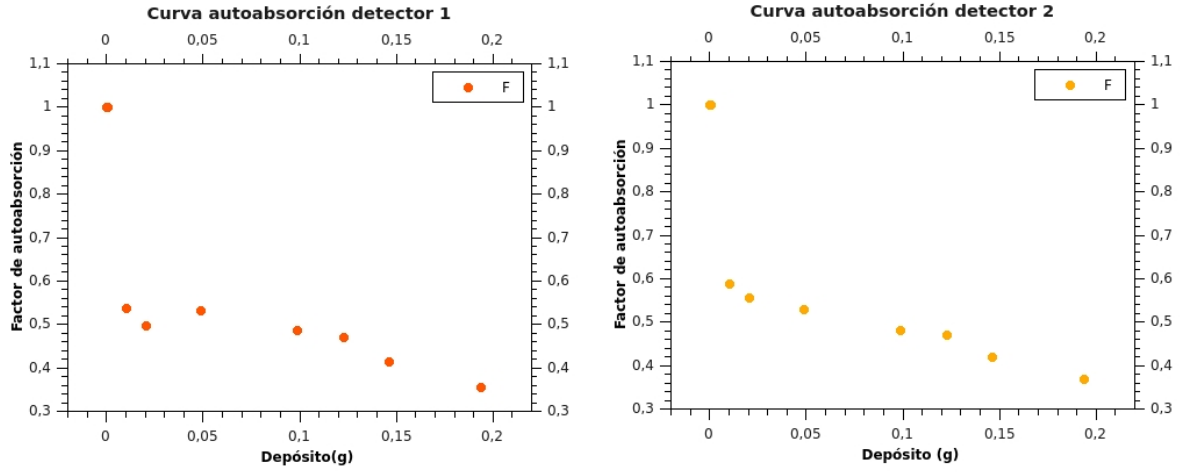


Figura 13: (a) Representación del factor de autoabsorción frente al depósito expresado en gramos para el detector 1. (b) Representación del factor de autoabsorción frente al depósito expresado en gramos de la plancheta para el detector 2.

Estos datos se pueden ajustar a una función potencial donde F representa el factor de autoabsorción y x es el depósito expresado en gramos, de tal manera que:

- Detector 1: $F = 0,34187 \cdot x^{-0,12735}$ con $R^2 = 0,9616$.
- Detector 2: $F = 0,33595 \cdot x^{-0,13019}$ con $R^2 = 0,9934$.

4.3. Análisis de las muestras de agua

Una vez caracterizados los contadores en el apartado 4.1 y descrito el proceso de preparación de planchetas de agua en 3.3.1 se introducen en el cambiador de muestras. Se debe esperar al menos una hora antes de iniciar su conteo porque en el proceso de manipulación de la plancheta con el disco de $ZnS(Ag)$ se ha podido activar el cristal y dar una medida incorrecta. Posteriormente, se realiza una medida de la plancheta durante 1400 minutos.

En la tabla 2 se muestran los valores obtenidos del índice de actividad alfa total con su incertidumbre asociada en unidades de Bq/m^3 así como la actividad mínima detectable en unidades de Bq/m^3 , para doce muestras de agua correspondientes a los meses del año 2012 en un contador de centelleo sólido de $ZnS(Ag)$ y en un contador proporcional de flujo de gas como el comentado en el apartado 2.3.

4.3.1. Análisis de los resultados

En este apartado compararemos los resultados obtenidos para las muestras de agua potable del año 2012 en el contador de $ZnS(Ag)$ con los resultados de las medidas de estas mismas planchetas de agua en un contador proporcional *alfa-beta* de flujo de gas. También se comparan los resultados obtenidos con los máximos valores que puede alcanzar el índice de actividad alfa total según la legislación [2] y finalmente los compararemos con el índice de actividad alfa total

	ZnS(Ag)			Contador flujo de gas		
	Índice	Incertidumbre	AMD	Índice	Incertidumbre	AMD
Enero	17	10	13	11	64	127
Febrero	20	10	13	20	51	97
Marzo	16	11	15	16	55	106
Abril	17	9,8	13	21	32	56
Mayo	16	11	15	13	49	97
Junio	23	11	13	23	57	108
Julio	23	11	14	13	19	32
Agosto	42	13	13	37	53	93
Septiembre	19	11	16	19	38	72
Octubre	18	8,6	10	9,5	49	101
Noviembre	28	11	11	27	98	189
Diciembre	19	10	13	60	61	97

Tabla 2: Resultados de la medida de las planchetas de agua potable correspondientes al año 2012. Índice de actividad alfa total, su incertidumbre y la actividad mínima detectable (AMD) expresadas en Bq/m^3 . En la parte de la izquierda se muestran los resultados para el contador de centelleo sólido de ZnS(Ag), en la derecha los resultados para un contador proporcional *alfa-beta* de flujo de gas.

de muestras de agua potable de distintas ciudades de España que pertenecen a la Red de Vigilancia de ámbito nacional del CSN, Consejo de Seguridad Nuclear [11].

Si comparamos los valores de los índices de actividad alfa total para las mismas muestras de agua potable medidas en el contador de centelleo sólido $ZnS(Ag)$ y en el contador proporcional *alfa-beta* de flujo de gas mostrados en la tabla 2, encontramos valores muy similares en el índice de actividad alfa total. La eficiencia promedio en un contador de centelleo sólido $ZnS(Ag)$ es de un 40 % mientras que para un contador proporcional *alfa-beta* de flujo de gas la eficiencia para detectar partículas alfa disminuye hasta un 20 %. El volumen tan reducido que se utiliza de muestra para la medida y el grueso depósito hace que los valores de incertidumbre y AMD (actividad mínima detectable) sean tan elevados.

En el gráfico 14 se muestran los valores de índice de actividad con su incertidumbre presentados en la tabla 14. El índice de actividad se representa con un círculo azul y con una línea roja se muestra el límite de actividad alfa total para agua potable de $100Bq/m^3$ establecido en el Real Decreto [2]. En las medidas se observa que el mayor valor de índice de actividad se registró en Agosto con un valor de $42 \pm 13Bq/m^3$ y el mínimo en los meses de Marzo y Mayo con valores de $16 \pm 11Bq/m^3$, permaneciendo inferiores al límite establecido por el Real Decreto [2].

Asimismo, comparamos los valores de índice de actividad alfa total para muestras de agua potable con valores obtenidos en otros puntos de vigilancia de España [11]. En la tabla se muestran los valores máximos y mínimos de índice de actividad alfa total detectados en agua potable durante el año 2010. El máximo valor detectado fue en La Laguna, mientras que el mínimo detectado fue en Ferrol.

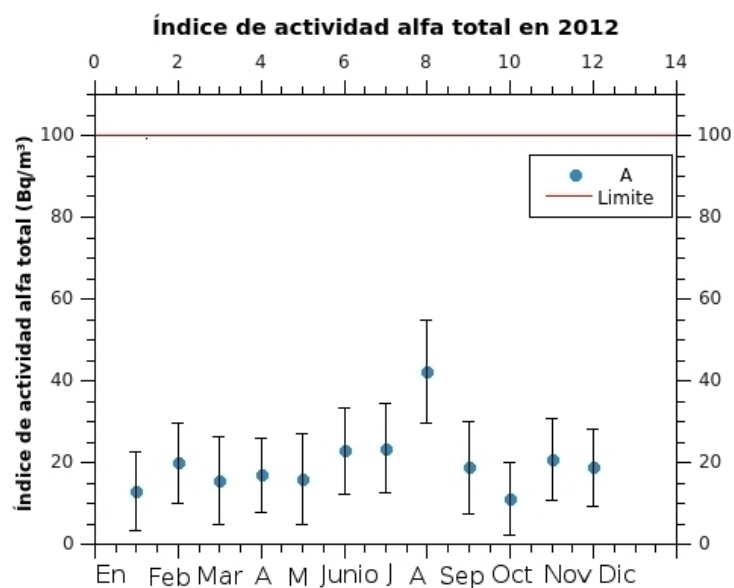


Figura 14: Evolución del índice de radiactividad alfa total a lo largo del año 2012 con su incertidumbre asociada.

Laboratorios	Valor máximo Bq/kg	Valor mínimo Bq/kg
Badajoz	12	7,5
I. Baleares	37	15
Barcelona	53	16
Cantabria	5,8	5,1
Granada	47	7,2
León	65	22
La Laguna	180	70
Madrid	21	13
Madrid-Ciemat	8,7	1,5
Málaga	10	3,8
Oviedo	20	11
Bilbao	18	3,3
Salamanca	8,3	5,3
Sevilla	32	32
Valencia	52	19
Valencia P	66	30
Zaragoza	6,6	2,2

Tabla 3: Valores del índice de actividad alfa total máximo y mínimo de agua presentados en el programa de vigilancia radiológica ambiental, resultados de 2010.

Comparando los valores mensuales del 2012 de la tabla 2 con los valores de la tabla 3 observamos que todas las ciudades cumplen con los valores límite de [2] excepto La Laguna. Los valores obtenidos para el índice de actividad alfa total en Zaragoza son inferiores en promedio

con los obtenidos en 2010, lo que se puede justificar por el origen del agua de consumo en la ciudad de Zaragoza [12]. Con anterioridad a 2010, el abastecimiento de agua a la ciudad era en su totalidad del Canal Imperial. A partir de Junio de 2009, el consumo se combinaba con agua de origen del embalse de Yesa al 50 % y solamente a partir de Julio de 2010 el agua de consumo comienza a ser del embalse de Yesa al 100 %, lo que incrementará su índice de actividad alfa total. Al tratarse de aguas de origen montañoso, en concreto de los Pirineos, al ser un suelo más granítico tiene mayor concentración en isótopos radiactivos naturales.

Una vez analizadas las muestras de agua centramos nuestra atención en las muestras de suelo. En el caso del suelo no existe una limitación establecida como para el agua potable. De hecho, la determinación del índice de actividad alfa total en suelos es poco frecuente en los laboratorios y existen muy pocos estudios y datos en relación con este campo.

4.4. Muestras de suelo

Una vez caracterizados los contadores en el apartado 4.1 y descrito el proceso de preparación de planchetas de suelo en 3.3.2 éstas se introducen en el cambiador de muestras. Del mismo modo que en el caso de las muestras de agua, se debe esperar al menos una hora antes de iniciar su conteo, porque en el proceso de manipulación de la plancheta de muestra de suelo con el disco de $ZnS(Ag)$ se ha podido activar el cristal y dar una medida incorrecta. Posteriormente, se realiza una medida de la plancheta durante 1400 minutos. En la figura 15 se indica la posición de los diferentes puntos de muestreo de suelo en Aragón.

En la tabla 4 se exponen los valores obtenidos del índice de actividad alfa total con su incertidumbre asociada en unidades de Bq/kg , así como la actividad mínima detectable para muestras de suelo de diversas localidades de Aragón, medidas en un contador de centelleo sólido de $ZnS(Ag)$ y en un contador proporcional *alfa-beta* de flujo de gas, comentado en la sección 2.3.

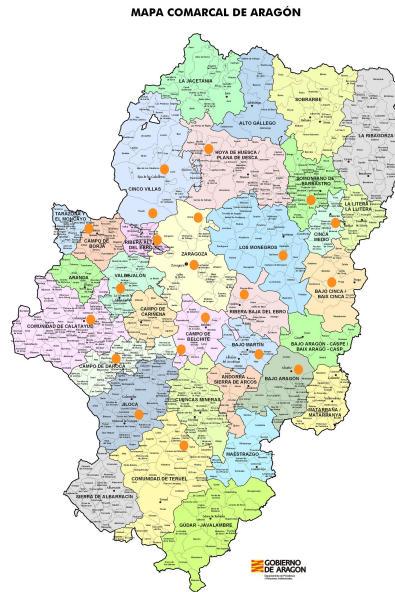


Figura 15: Posición de los diferentes puntos de muestreo de suelo en Aragón

	ZnS(Ag)			Contador flujo de gas		
	Índice	Incertidumbre	AMD	Índice	Incertidumbre	AMD
Pina de Ebro	840	97	48	750	304	322
Sariñena	525	55	21	531	215	228
Belchite	404	49	21	554	224	238
Perales Alfambra	1047	68	17	1284	264	163
Hijar	588	61	27	315	158	184
La Almunia	717	48	15	750	162	107
Calatayud	295	33	14	326	116	93
Ayerbe	450	54	27	500	208	217
Zuera	706	83	36	624	270	297
Borja	328	44	25	286	157	190
Monzon	984	81	5,7	667	218	186
Tauste	404	52	25	472	208	226
Fraga	1192	110	45	864	317	317
Alagon	164	26	17	187	98	33
Daroca	1293	79	22	980	183	102
Huesca	372	39	15	469	190	189
Zaragoza	444	57	6,4	464	141	116

Tabla 4: Resultados de la medida de las planchetas suelo. Índice de actividad alfa total, su incertidumbre y la actividad mínima detectable (AMD) expresadas en Bq/kg . En la parte de la izquierda se muestran los resultados para el contador de centelleo sólido de ZnS(Ag), en la derecha los resultados para un contador proporcional *alfa-beta* de flujo de gas.

4.4.1. Análisis de los resultados

En este apartado compararemos los resultados obtenidos en las distintas muestras de suelo, medidas en el contador de $ZnS(Ag)$ con los resultados de las medidas de estas mismas planchetas en un contador proporcional *alfa-beta* de flujo de gas. También se comparan los resultados obtenidos con valores obtenidos en otros países.

Si analizamos los resultados mostrados en la tabla 4 podemos observar que el valor del índice de actividad alfa total varía mucho en función de la zona de muestreo. Este hecho se justifica teniendo en cuenta la composición geológica tan diversa de los puntos de estudio. Aragón presenta como cualquier otro territorio, diversidad orográfica y por tanto geológica, tiene como eje central el valle del Ebro que transita entre dos formaciones montañosas como son el Pirineo al norte y el Sistema Ibérico al sur. En la composición geológica del Pirineo predominan los materiales más antiguos como granitos, cuarcitas, pizarras y calizas. En cambio, la depresión del Ebro es una fosa tectónica rellena de materiales finos como arcillas, yesos y calizas. El Sistema Ibérico está formado por cuarcitas y pizarras paleozoicas, en parte recubiertas por calizas mesozoicas.

Atendiendo a la composición de los suelos [13], las arcillas y lutitas contienen alta cantidad de elementos radioactivos. Además, el contenido en isótopos como Uranio y Torio es mayor si aumenta el contenido en arcillas, debido a la adsorción en la superficie de los minerales de la arcilla [14]. La zona del Alto Aragón posee regiones arcillosas [15], así se podría justificar un incremento en la zona de Ayerbe, y el Cinca Medio. La zona de Daroca corresponde al sector central del Sistema Ibérico [16], caracterizado geológicamente por pizarras y cuarcitas cámbrico-silúricas, recubierto por una capa delgada de materiales mesozoicos, principalmente calcáreos. El hundimiento alpino de las fosas Calatayud-Daroca, permitió durante el mioceno, la acumulación de conglomerados, areniscas, arcillas, calizas y yesos en régimen lacustre. Por tanto, las arcillas presentes pueden ser las causantes del índice de radiactividad elevado que se registra en Daroca.

Comparamos ahora los resultados obtenidos en el contador de $ZnS(Ag)$ con los resultados de las medidas de estas mismas planchetas en un contador proporcional *alfa-beta* de flujo de gas. Del mismo modo que en el caso del agua, se observa que la incertidumbre y la AMD calculadas según las ecuaciones 14 y 15 son muy elevadas. Recordamos que la eficiencia de un contador proporcional de flujo de gas es del 20 % para la medida de actividad alfa. El volumen tan reducido que se utiliza de muestra así como un depósito grueso de suelo, generan estos valores elevados de incertidumbre y AMD.

Los valores de los índices de actividad alfa total de las muestras analizadas se encuentran en un rango entre $164 - 1293 Bq/kg$. El mínimo valor del índice de actividad corresponde a Alagón con un valor de $164 \pm 26 Bq/kg$ y máximo valor en Daroca con valor de $1293 \pm 79 Bq/kg$.

Podemos además comparar estos valores con el índice de actividad alfa total [8] determinado en la fábrica de elementos combustibles de Juzbago, situada cerca de Salamanca. El valor máximo medido es de $1020 Bq/kg$, el mínimo es de $316 Bq/kg$, y valor promedio de $486 Bq/kg$.

Por último, comparamos los resultados que hemos obtenido y que se muestran en la tabla 4 con resultados de estudios realizados en otros países con otros tipos de suelos. En concreto, para

muestras de suelo tomadas en Udaipur (Rajasthan) [14], los límites encontrados para el índice de actividad alfa total son $175 - 2260 Bq/kg$. Por otra parte, en un estudio realizado en Drazljevo (Bosnia Herzegovina) [17] con muestras de suelo cerca de una mina de carbón obtuvieron valores para el índice de actividad alfa total rangos entre $66,7 - 102,4 Bq/kg$. En Turquía, con muestras de suelo del río Bendimahi y del lago Van [18], se determinó que el rango para el índice de actividad alfa total variaba entre $800 - 4277 Bq/kg$.

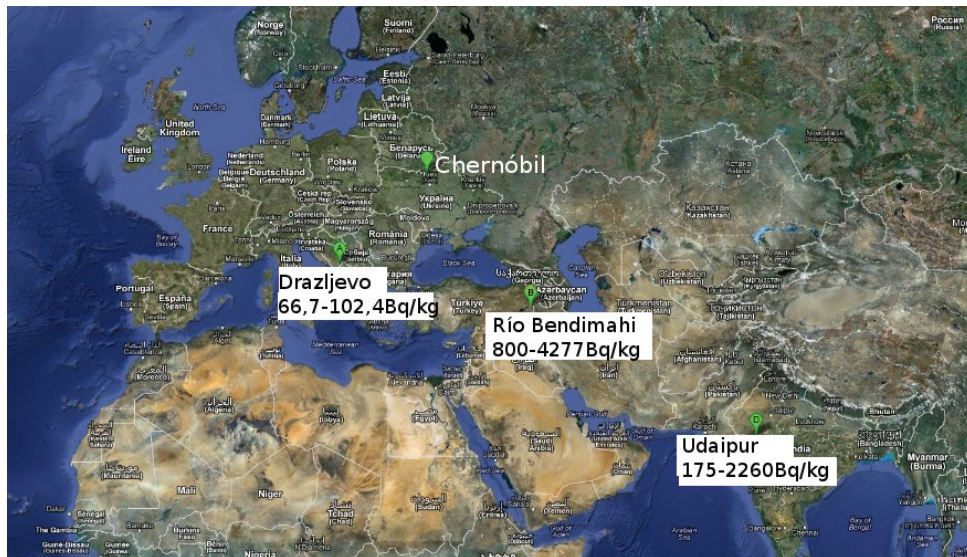


Figura 16: Localización en un mapa de los valores de índices de actividad alfa total obtenidos en otros puntos del mundo.

Por tanto, podemos concluir que el índice de actividad alfa total para muestras de suelo de distintas localidades de Aragón se encuentra dentro del rango de valores que se obtiene en otros países.

5. Conclusiones

En este trabajo hemos presentado la caracterización de dos contadores de centelleo sólido de ZnS(Ag) y su empleo para la medida del contenido radiactivo alfa total de muestras de agua potable de la red de Zaragoza con periodicidad mensual durante el año 2012 y muestras de suelo de distintas localidades de Aragón, ambas de interés medioambiental. Tras el estudio de las medidas para la determinación de los parámetros óptimos de funcionamiento, se observa que ambos detectores presentan características óptimas de operación diferentes.

- En el caso del detector 1 de ZnS(Ag), el voltaje óptimo de operación es de 0.85kV trabajando con un nivel inferior de discriminación de 0,2, con una ganancia de 32 y una eficiencia de 39.61 % . Para el detector 2 de ZnS(Ag), se ha obtenido un voltaje óptimo de operación de 0.88kV trabajando con un nivel inferior de discriminación semejante al detector 1 y una eficiencia de 39,47 % . Sin embargo, opera a una ganancia de 8, inferior a la del detector 1 ya que el tubo fotomultiplicador de este sistema de detección es más reciente. Además, se ha determinado la curva de autoabsorción correspondiente a ambos detectores. Su valor debe ser determinado para poder corregir adecuadamente los resultados de las medidas.
- Las planchetas de muestras de agua potable se han medido en los contadores de centelleo sólido ZnS(Ag) y se ha determinado el índice de actividad alfa total. Las muestras de agua cumplen las exigencias establecidas por el RD 140/2003 que sitúa el límite de actividad alfa total en $100Bq/m^3$. La muestra con mayor índice de actividad alfa total corresponde al mes de agosto con un valor de $42 \pm 13Bq/m^3$, siendo menor que el límite.
- Las planchetas de muestras de suelo se han medido en los contadores de centelleo sólido ZnS(Ag) y se ha obtenido su índice de actividad alfa total. El rango de valores obtenidos fluctúa desde valores bajos como es el caso de Alagón, con un índice de actividad alfa total de $164 \pm 26Bq/kg$ hasta valores como es el caso de Daroca con $1293 \pm 79Bq/kg$. La justificación de esta diferencia en el orden de índices de actividad alfa total reside en la diferente composición del suelo. Con el fin de enmarcar los resultados en un contexto más amplio se realiza una comparación con suelos de distintos puntos del mundo, obteniéndose unos resultados consistentes.
- Las muestras de agua y de suelo se han medido también en un contador proporcional de flujo de gas, obteniéndose valores semejantes para el índice de actividad alfa total. En cambio, a causa del volumen reducido de muestra que se utiliza para minimizar la autoabsorción, la incertidumbre y la AMD aumentan. Es un equipo que presenta una eficiencia mucho menor, del orden del 20 % para la detección de partículas alfa, respecto al contador de centelleo sólido ZnS(Ag) cuya eficiencia es del orden del 40 %.

Referencias

- [1] Organización Mundial de la Salud: <http://www.who.int/es/>
- [2] Real Decreto 140/2003, BOE núm 45 pag 7228. Por el que se establecen los criterios sanitarios de la calidad del agua de consumo humano.
- [3] García Álvarez,A., Ibáñez,J.J. y Pérez González,A. 1993. Centrales nucleares e impacto ambiental en el medio edáfico. *Ecología*, 7: 19-25.
- [4] Burcham and Jobes, *Nuclear and Particle Physics*, Pretince Hall.
- [5] G.F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, John Wiley & Sons, 3rd ed.
- [6] Cuadernos de Investigación. *Índice de actividad beta total: Curvas de autoabsorción*. José Antonio Suárez Navarro y Lluís Pujol Terés. CEDEX: Centro de Estudios y Experimentación de Obras Públicas. Ministerio de Medio Ambiente
- [7] Cuadernos de Investigación. *Índice de actividad alfa total: Contador de centelleo sólido de ZnS(Ag)*. José Antonio Suárez Navarro y Lluís Pujol Terés. CEDEX: Centro de Estudios y Experimentación de Obras Públicas. Ministerio de Medio Ambiente
- [8] Informes Técnicos 11.2005. *Procedimientos para la determinación del índice de actividad alfa total en muestras de agua. Métodos de coprecipitación y evaporación*
- [9] ISO 18589-6 Measurements of radioactivity in the environment-Soil-Part 6: Measurement of gross alpha and gross beta activities.
- [10] ISO 11929-7: http://www.iso.org/iso/home/store/catalogue_ics/catalogue_detail_ics.htm?csnumber=31070
- [11] Programas de vigilancia radiológica ambiental. Resultados 2010. CSN. Colección Informes Técnicos 30.2011
- [12] www.figueres.cat/upload/mediambient-FC2011_Zaragoza.pdf
- [13] Br. Mairú del Carmen Rodríguez Marchán *Elaboración de un sistema de información (base de datos) con el fin de ordenar y clasificar datos petrofísicos*. Universidad de Simón Bolívar, Ingeniería Geofísica. Sartenejas, Marzo de 2005.
- [14] Dr. Brijesh Pathak, Archana Pathak *Estimation of gross alpha activity in soil and plant samples in Udaipur, Rajasthan*. International Journal of Scientific & Engineering Research, Volume 3, Issue 6, June 2012.
- [15] <http://www.suelosdearagon.com/contenido.php?padre=9&IDContenido=9>
- [16] http://www.calatayud.org/enciclopedia/comunidad_geologia.htm
- [17] Natasa Sarap, Vesna Krajsnik, Marija Jankovic, *Determination of gross α and β activities in soil samples from Drazljevo Landfill (Power Plant Gacko)*.

- [18] Özlem Selçuk Zorer, Hasan Ceylan, Mahmut Dogru *Gross alpha and beta radioactivity concentration in water, soil and sediment of the Bendimahi River and Van Lake (Turkey)*.11 January 2008. Springer Science + Business Media B.V. 2008
- [19] Operator's Manual: Photomultiplier tube base Model 2007. Canberra
- [20] Operator's Manual: Amplifier/TSCA Model 2015A. Canberra
- [21] Cuadernos de Investigación. *Prácticas de Laboratorio de radiactividad ambiental*. José Antonio Suárez Navarro y Lluís Pujol Terés. CEDEX: Centro de Estudios y Experimentación de Obras Públicas. Ministerio de Medio Ambiente